

大気中の総浮遊ふんじんに含まれる多環芳香族炭化水素の粒径分布特性

富山県立大学 黒田吉宏・(正)奥川光治・鎌谷綾乃・(正)川上智規

1. はじめに

有機化合物は微量でも生物の体内に蓄積され、毒性を発現する可能性があるため、有害な有機微量汚染物質による人の健康への影響と生態系への影響が懸念されている。多環芳香族炭化水素(PAHs)はおもに石油、石炭など化石燃料や木材、廃棄物の燃焼等に伴って大気中に放出されるため、有機微量汚染物質の中でも広く大気や降水、土壌などから検出される物質である。しかも、その一部や誘導体には発ガン性や変異原性、内分泌攪乱性があることが指摘されているものがあり、環境中での動態を評価することが重要な課題となっている。著者らはここ数年北陸・東海において大気降下物中の PAHs に焦点をあて、その含有特性と降下量について解明し、長距離輸送の可能性を示唆してきた(奥川, 2007)。本研究の目的は、粒径で分級して採取した大気中の総浮遊ふんじん(TSP)に含まれる 3 環から 7 環の PAHs の分布特性を明らかにし、長距離輸送を考察するための基礎資料を得ることである。

2. 方法

調査地点は富山県中央部の都市近郊にある富山県立大学であり、4階建ての環境工学科棟屋上にアンダーセンサンプラー(柴田科学 AN-200)を設置し、TSP を粒径で8段階に分級して採取した。調査は 2007 年 10 月末から原則として月1回1年間実施した。以下では 11 月, 12 月, 1 月等の調査と称する。吸引流量は 28.3 L min^{-1} で、各回の吸引日数は原則として 10 日ないし 15 日程度である。濾紙には、純水中での超音波洗浄後 600°C で強熱処理した石英フィルター(東京ダイレック 2500QAT -UP)を使用した。

TSP を採取した石英フィルターは、ジクロロメタン(DCM)でソックスレー抽出した。抽出液は硫酸ナトリウムのカラムで脱水後、ロータリーエバポレータを使用し 45°C で減圧せずに濃縮し、アセトンにより 4mL に定容した。そのうち 2mL は揮散防止剤として $50 \mu\text{L}$ のジメチルスルホキシド(DMSO)を加えて、窒素気流下 $40\sim 50^\circ\text{C}$ でアセトンを蒸発させたのち、アセトニトリルで 2mL とした。このようにして得られたアセトン溶液、アセトニトリル溶液をそれぞれ GC/MS, HPLC の分析に供した。

PAHs は GC/MS-SIM 法により低分子量の 4 成分 (Anthracene, Phenanthrene, Fluoranthene, Pyrene)を、また蛍光検出 HPLC を用いてアセトニトリル-水によるグラディエント法で高分子量の 10 成分 (Benzo[a]anthracene, Chrysene, Benzo[e]acephenanthrylene, Benzo[k]fluoranthene, Benzo[a]pyrene, Benzo[e]pyrene, Benzo[ghi]perylene, Indeno[1,2,3-cd]pyrene, Dibenzo

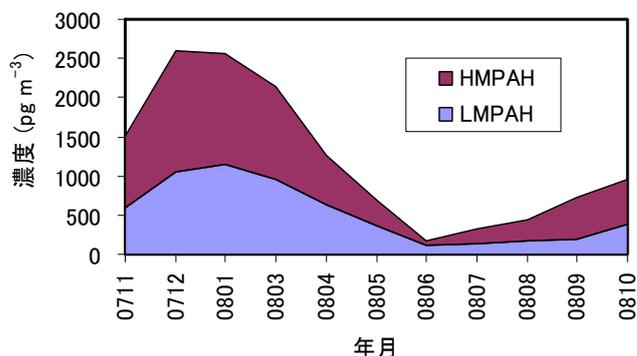


図1 総 PAHs 濃度の季節変化.

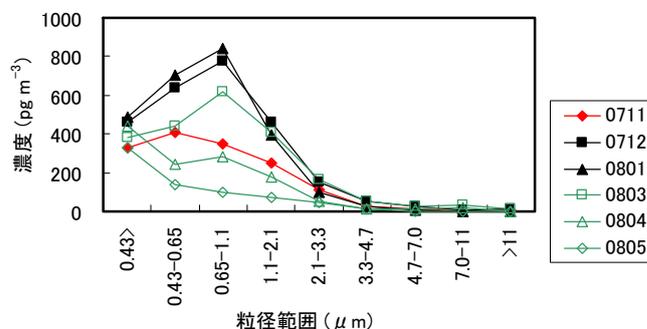


図2 総 PAHs 濃度の粒径分布の季節変化 (2007/11~2008/5).

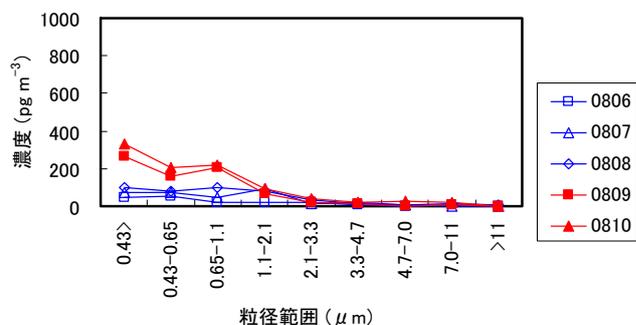


図3 総 PAHs 濃度の粒径分布の季節変化 (2008/6~2008/10).

[a,h]anthracene, Coronene)を分析した. 以下ではそれぞれ ANT, PNT, FLRT, PRN, BaA, CRS, BeAP, BkF, BaP, BeP, BghiPRL, I123cdP, DBahA, CRN と略記する. なお, ANT と PNT はピーク分離が不十分だったため, 合計量で扱った.

3. 結果および考察

図 1 に総 PAHs 濃度の季節変化を示した. 図中の 0711 等は調査年月である. また, LMPAH は低分子量の PAHs を示しており, ANT+PNT から CRS までの 3, 4 環の PAHs の合計量である. HMPAH は高分子量の PAHs であり, BeAP から CRN までの 5~7 環の PAHs の合計量である. 総 PAHs 濃度は 12~1 月の $2500\sim 2600\text{ pg m}^{-3}$ が最高値で, 6 月の 177 pg m^{-3} が最低値であった. 既往の研究でも冬期に大気や降水中の PAHs 濃度が高くなると指摘されている. また, LMPAH の比率は 4~6 月に 50~60%とやや高くなり, 9 月には 27%とやや低くなった. 他の月は 40%程度あった. 4~6 月に LMPAHが高くなるのは, 蒸発量の増加やHMPAHの光分解が原因として考えられる.

図 2~3 は総 PAHs 濃度の粒径分布の季節変化を示したものである. PAHs 濃度が高くなる粒径区分は, どの月も $2.1\sim 3.3\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒径区分であり, PM2.5 と対応する. 最も濃度の高い粒径区分は 11 月では $0.43\sim 0.65\text{ }\mu\text{m}$, 12~3 月では $0.65\sim 1.1\text{ }\mu\text{m}$, 4~5 月および 9~10 月は $0.43\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒径区分であった. 冬期に $0.65\sim 1.1\text{ }\mu\text{m}$ の粒径区分が増加することが分かる.

図 4~7 に全粒径区分ならびに一部の粒径区分における PAHs 組成の季節変化を示した. 全粒径区分に注目すると, 11 月は他の月と傾向が異なり, BeAP, BghiPRL, PRN, BeP, FLRT の順に多かった. 12~3 月では BeP, BeAP, FLRT などが多かった. 4~5 月には FLRT よりも ANT+PNT が多くなった. BeAP と BeP は 7 月に少なくなったが, 9~10 月には再び増加の傾向にあった. 粒径区分 6 ($0.65\sim 1.1\text{ }\mu\text{m}$) では冬期に低分子量の PAHs の比率が高くなった. 粒径区分 8 ($0.43\text{ }\mu\text{m}$ 以下) では CRS が冬期に増加した.

謝辞 本研究の遂行にあたり, 奥川研究室学生の秋田絵莉香さんと細川諒輔さんの協力を得た. 心から感謝の意を表したい.

参考文献 奥川光治(2007)環境工学研究論文集, 44.

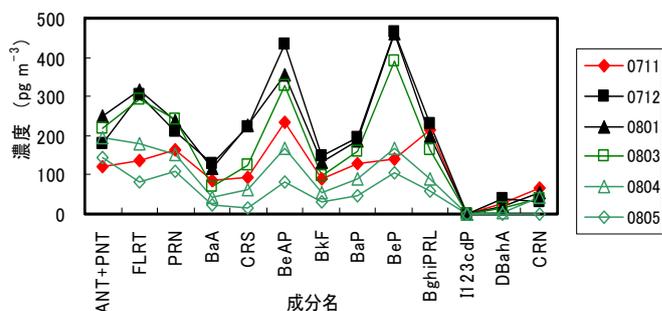


図 4 PAHs 組成の季節変化
(全粒径区分, 2007/11~2008/5).

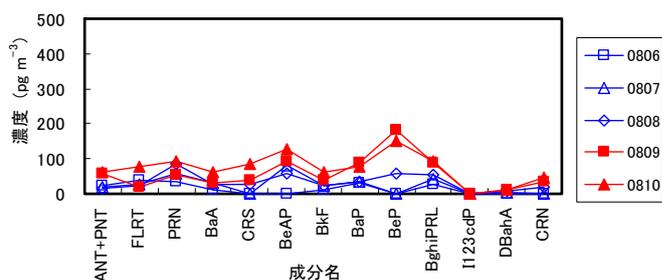


図 5 PAHs 組成の季節変化
(全粒径区分, 2008/6~2008/10).

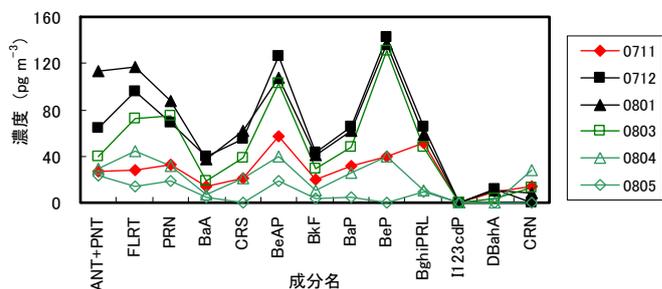


図 6 PAHs 組成の季節変化(粒径区分 6,
 $0.65\sim 1.1\text{ }\mu\text{m}$, 2007/11~2008/5).

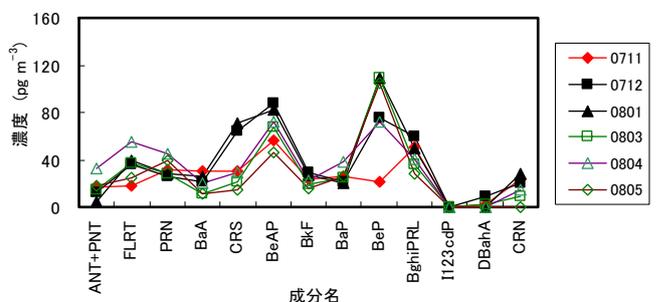


図 7 PAHs 組成の季節変化(粒径区分 8,
 $0.43\text{ }\mu\text{m}$ 以下, 2007/11~2008/5).